

05,06,13

## Влияние упруго-напряженного состояния интерфейсов на магнитоэлектрические свойства слоистых структур ферромагнетик/сегнетоэлектрик

© С.А. Шарко<sup>1</sup>, А.И. Серокурова<sup>1</sup>, Н.Н. Новицкий<sup>1</sup>, Н.Н. Поддубная<sup>2</sup>, В.А. Кецко<sup>3</sup>, А.И. Стогний<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Научно-практический центр НАН Беларуси по материаловедению, Минск, Беларусь

<sup>2</sup> Институт технической акустики НАН Беларуси, Витебск, Беларусь

<sup>3</sup> Институт общей и неорганической химии им. Н.С. Курнакова РАН, Москва, Россия

E-mail: sharko@physics.by

Поступила в Редакцию 17 апреля 2023 г.

В окончательной редакции 17 апреля 2023 г.

Принята к публикации 11 мая 2023 г.

В слоистых структурах ферромагнетик/сегнетоэлектрик в виде слоя кобальта, никеля или пермендюра на сегнетоэлектрической подложке цирконата титаната свинца, полученных методом ионно-лучевого распыления — осаждения, относительные деформации, обусловленные рассогласованием кристаллических решеток сопрягаемых материалов на интерфейсе металл/подложка, вносят более заметный вклад в магнитоэлектрический отклик, чем деформации, связанные с магнитострикцией ферромагнитного слоя и с пьезоэффектом сегнетоэлектрической подложки. Полученные структуры отличаются термостабильностью и воспроизводимостью магнитоэлектрических характеристик и могут найти применение в качестве преобразователей магнитных и электрических величин, например, в магнитолевых сенсорах и исполнительных устройствах.

**Ключевые слова:** ионно-лучевое распыление — осаждение; ионно-лучевая планаризация; слоистые структуры; интерфейс ферромагнетик/сегнетоэлектрик; магнитоэлектрический эффект.

DOI: 10.21883/FTT.2023.06.55659.27H

### 1. Введение

За последние десятилетия материаловедение достигло колоссальных успехов в разработке новых (функциональных) материалов. Это во многом обусловлено растущей потребностью в материалах с уникальными свойствами в различных сферах научно-технической и хозяйственно-экономической деятельности. В большой степени это касается таких материалов, свойствами которых можно управлять в широких пределах посредством внешних электрических и магнитных полей.

Фундаментальная взаимосвязь между электрическими и магнитными свойствами вещества в конденсированном состоянии выявляется с помощью магнитоэлектрического (МЭ) эффекта [1–3]. В основе данного явления лежит взаимодействие электрической и магнитной упорядоченных подсистем через механическую связь: возникающие в образце механические деформации посредством внешнего воздействия на одну из подсистем (электрическую либо магнитную) приводят к соответствующему отклику в другой подсистеме. Воздействие магнитной подсистемы на электрическую условилось называть прямым МЭ-эффектом [4], если же изменяется магнитное состояние во внешнем электрическом поле — то это обратный эффект [5]. Наиболее отчетливо

МЭ-эффект наблюдается в слоистых композиционных структурах, в которых обе упорядоченные подсистемы пространственно отделены друг от друга. Такие структуры являются частным случаем более общего класса понятий — мультиферроиков [1–3] — композиционных материалов, в структуре которых имеется, как минимум, два из трех упорядочений: электрическое, магнитное и механическое. И в таких материалах МЭ-эффект является новым свойством, не известным для составляющих их компонентов (мультипликативность).

Материалы на основе МЭ-эффекта [6] могут найти применение в качестве различных преобразователей магнитных и электрических величин. Это, например, энергонезависимая MeRAM память [7] и высокочувствительные датчики магнитных полей [8–10]. Композиционные системы в виде слоистых структур ферромагнетик/сегнетоэлектрик [6,7,11,12] обладают значительно большей величиной МЭ-эффекта при комнатной температуре [3,10], чем однофазные материалы [3,13,14]. Большой интерес вызывают мультиферроики в виде слоев ферромагнитных (ФМ) металлов и их сплавов на подложках сегнетоэлектрической (СЭ) керамики на основе цирконата — титаната свинца (PZT). Твердые растворы на основе PZT обладают большими значени-

ями остаточной поляризованности, пьезомодуля и механической добротности [15,16].

Большинство существующих в настоящее время методов формирования слоистых композитных структур основано на механическом соединении слоев сегнетоэлектрика и ферромагнетика, например, путем склеивания [3,14,17,18]. Данные методы позволяют получать высокие значения МЭ-характеристик [3]. Однако, как бы хороши эти методы ни были, они являются непригодными как для создания термостабильных материалов с воспроизводимыми свойствами, что немаловажно для эксплуатации устройств при высоких температурах; так и для исследования МЭ-эффекта в предельном переходе к малым толщинам. Все эти особенности вытекают из наличия клевого слоя на границе раздела ферромагнетик/сегнетоэлектрик, что само по себе ослабляет непосредственное взаимодействие между компонентами на низких частотах, значительно меньших характерных частот возбуждения механических колебаний.

Метод ионно-лучевого распыления — осаждения [19–22] позволяет устранить данные недостатки путем непосредственно нанесения слоя ФМ-металла на СЭ-подложку после предварительной ионно-лучевой планаризации ее поверхности и создать прямой контакт металлический слой/подложка. Это дает возможность формировать термостабильный плоскостепенный интерфейс и получать слоистые структуры ферромагнетик/сегнетоэлектрик с МЭ-эффектом [23] при комнатной температуре. С другой стороны, получение тонких слоев как ФМ, так и СЭ-компонент вызывает интерес к исследованию МЭ-эффекта при предельном переходе к малым толщинам и интерфейсам. В частности, роль поверхности раздела в формировании МЭ-свойств должна возрастать с уменьшением толщины ФМ-слоя. Это эквивалентно усилению вклада упругой деформации ФМ и СЭ-компонент на интерфейсе.

В данной статье методом ионно-лучевого распыления — осаждения были получены структуры в виде ФМ-слоев кобальта, никеля и пермендия толщиной  $2\ \mu\text{m}$  на подложках СЭ-керамики PZT состава  $\text{PbZr}_{0.45}\text{Ti}_{0.55}\text{O}_3$  толщиной  $400\ \mu\text{m}$ . Показано преобладающее влияние упруго-напряженного состояния на интерфейсе ферромагнетик/сегнетоэлектрик на формирование низкочастотного МЭ-эффекта, по сравнению с магнитоэлектрической ФМ-слоя и пьезоэффектом СЭ-подложки.

## 2. Эксперимент

СЭ-керамика на основе PZT-состава  $\text{PbZr}_{0.45}\text{Ti}_{0.55}\text{O}_3$  синтезировалась в виде таблеток диаметром  $8\ \text{mm}$  и толщиной  $400\ \mu\text{m}$  по стандартной технологии методом твердофазного синтеза [19] путем спекания порошкообразных оксидов  $\text{PbO}$ ,  $\text{ZrO}_2$  и  $\text{TiO}_2$ , взятых в соответствующей пропорции, прессованных под давлением  $2 \cdot 10^8\ \text{Pa}$ . Поверхность керамических подложек последовательно обрабатывалась методами механохимического

полирования и ионно-лучевой планаризации с целью доведения ее среднеквадратической шероховатости до наноразмерного уровня.

Операция ионно-лучевой планаризации состояла из двух этапов. На первом этапе на исходную поверхность PZT-подложки производилось напыление планаризирующего слоя PZT-толщиной  $0.2\ \mu\text{m}$  посредством распыления в течение  $45\ \text{min}$  соответствующей мишени ионами кислорода с энергиями  $1.2\text{--}1.4\ \text{keV}$ . На втором этапе поверхность подложки с осажденным слоем подвергалась распылению ионами кислорода с энергией  $0.4\ \text{keV}$  на глубину, в 2 раза превышающую толщину планаризирующего слоя. При ионно-лучевой планаризации поверхности керамической подложки происходит уменьшение ее характерных выступов и впадин и полное удаление мелких особенностей рельефа. Затем на планаризованную поверхность керамической подложки наносился слой ФМ-металла со скоростью  $1.1\ \mu\text{m}/\text{h}$  методом ионно-лучевого распыления мишени кобальта, никеля или пермендия ионами аргона с энергией  $1.4\ \text{keV}$ . Пермендий (Pd) представляет собой твердый раствор кобальта (49%) и железа (49%) и ванадия (2%) [24].

Поляризация образцов осуществлялась в постоянном электрическом поле  $4\ \text{kV}/\text{mm}$  в течение двух  $\text{h}$  при температуре  $150^\circ\text{C}$  по методике, описанной в [25]. Магнитоэлектрические измерения проводились при комнатной температуре в постоянном и переменном магнитных полях на частоте  $1\ \text{kHz}$ , согласно методике, описанной в [26]. Магнитное поле прикладывалось вдоль поверхности образца, а электрическое поле возбуждалось перпендикулярно ей (поперечная геометрия МЭ-эффекта). При исследовании на термостабильность образцы структур на планаризованных подложках равномерно охлаждались и нагревались в интервале температур от  $-25$  до  $+120^\circ\text{C}$  в течение пяти циклов длительностью  $2\ \text{h}$  [19].

Рентгеновские исследования полученных гетероструктур были проведены на дифрактометре Bruker D8 Advance (Германия, 2013 г.) в диапазоне углов  $2\theta$   $20\text{--}60^\circ$  на излучении  $\text{Cu-K}\alpha$  с длиной волны  $1.5405\ \text{\AA}$ . Фазы идентифицировались с использованием базы данных Неорганических кристаллических структур (Inorganic crystal structure database [27]). Анализ поперечных сечений полученных гетероструктур проводился на растровом электронно-ионном микроскопе РЭМ Helios NanoLab 600 производства FEI Company (США). Для получения поперечного сечения использовались фокусированные пучки ионов галлия с энергией  $32\ \text{keV}$ . Толщины металлических слоев определялись с помощью интерференционного микроскопа Линника–Номарски МИИ-4 и по данным РЭМ.

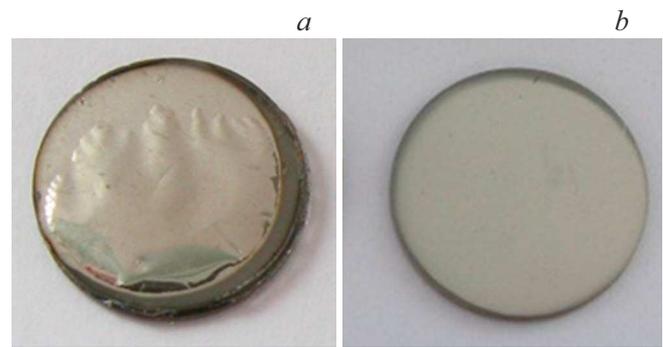
## 3. Результаты и обсуждение

Развитая поверхность образцов керамических материалов создает определенные сложности, связанные с

получением на такой поверхности качественных сплошных слоев металлов с термостабильным плоскопараллельным интерфейсом металл/подложка даже после стандартных операций механохимической обработки. Поверхность представляет собой разупорядоченный ансамбль кристаллитов со случайной ориентацией (рис. 1, *a*) и средним размером выступов и впадин того же масштаба, что и средний размер кристаллитов ( $\sim 1 \mu\text{m}$ ).

На поверхности металлического слоя структуры Co ( $3 \mu\text{m}$ )/PZT ( $400 \mu\text{m}$ ), полученной осаждением слоя кобальта на подложку PZT (рис. 1, *b*) после ионнолучевой планаризации, хорошо заметны дефекты в виде впадин, а также отдельных выступов с характерным размером  $\sim 1 \mu\text{m}$ , которые наследуются от поверхности подложки. Последние легко устраняются при планаризации поверхности PZT-пучком ионов кислорода  $\text{O}^+$ . В объеме самой подложки имеются полости неправильной формы, образуемые как в процессе синтеза керамических подложек при неплотной состыковке кристаллических зерен, так и при формировании поперечного сечения структуры пучком фокусированных ионов галлия  $\text{Ga}^+$ , в результате чего выпадают отдельные зерна. На поверхности планаризованной подложки металл формирует сплошной слой, конформно повторяя крупные детали ее рельефа (рис. 1, *b*, вставка сверху справа).

В случае развитого рельефа поверхности подложки металлическая пленка испытывает воздействие со стороны изгибных механических напряжений. При термических воздействиях они существенно возрастают, особенно в остроугольных местах интерфейса, из-за различия в коэффициентах теплового расширения пленки металла и PZT-подложки. Недостаточный теплоотвод в этих местах является причиной деградации исходных образцов (рис. 2, *a*) при тепловом воздействии. При осаждении слоя металла на планаризованную поверхность происходит усиление адгезии слоя металла к подложке. Как следствие, интерфейс становится плоским, параллельным и гладким. В этом случае пленка



**Рис. 2.** Внешний вид образцов Co/PZT после термоциклирования в диапазоне от  $-25$  до  $+120^\circ\text{C}$  до (*a*) и после (*b*) ионнолучевой планаризации поверхности подложки PZT.

металла подвергается влиянию только растягивающих и сжимающих напряжений, а слоистая структура при термическом воздействии не разрушается и сохраняет свой внешний вид (рис. 2, *b*).

На рентгенограммах (рис. 3) слоистых структур Co/PZT, Ni/PZT и Pd/PZT на планаризованных подложках имеются все основные рефлексы СЭ-подложки и наиболее интенсивные рефлексы ФМ-слоев металла. Их угловые смещения  $\Delta\theta$  относительно равновесных положений свидетельствуют о напряженном состоянии интерфейсных областей как слоя металла на подложке, так и самой подложки [22,28]. При этом относительные изменения межплоскостных расстояний  $\Delta d/d$  в перпендикулярном поверхности образца направлении

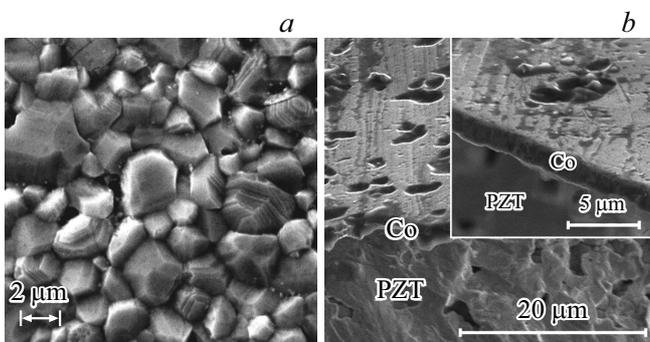
$$\Delta d/d = -\text{ctg } \theta \Delta\theta, \quad (1)$$

составляют менее 1% и только в единичных случаях превышают 2% (табл. 1). Знак „минус“ соответствует деформации сжатия и возникающим напряжениям растяжения.

Согласно модели аккомодации [29,30], применявшейся к эпитаксиальным пленкам феррит-гранатов, толщина области напряженного состояния определяется параметром рассогласования кристаллических решеток пленки металла и подложки

$$f^{\text{max}} = \Delta a/a = (a_{\text{sub}} - a_{\text{film}})/a_{\text{film}}, \quad (2)$$

где  $a_{\text{sub}}$  и  $a_{\text{film}}$  — параметры кристаллической решетки подложки и слоя металла в ненапряженном состоянии при комнатной температуре вдоль границы раздела. При достаточно малых значениях  $f$ , равных  $f^{\text{уп}}$  ( $\sim 10^{-3}$  [30]), эпитаксиальный слой упруго деформируется до равенства значений тангенциальных параметров кристаллических решеток металлического слоя и подложки (вдоль границы сопряжения). Применяя данную модель к сплошному плоскопараллельному интерфейсу Me/PZT, как в нашем случае, следует иметь в виду, что эпитаксиальный рост слоев металлов возможен только



**Рис. 1.** Поперечное сечение исходного керамического образца, полученное с помощью РЭМ (*a*), поперечное сечение и поверхность гетероструктуры Co ( $3 \mu\text{m}$ )/PZT ( $400 \mu\text{m}$ ) с полированной PZT подложкой (*b*), слой кобальта на подложке при большем увеличении (вставка сверху справа).

**Таблица 1.** Значения дифракционных углов  $2\theta$ -рефлексов от слоев кобальта, никеля и пермендюра и PZT-подложки, полученные из рентгенограмм (рис. 3), относительные искажения  $\Delta d/d$  межплоскостных расстояний, вычисленные по формуле (1), а также относительные деформации  $\varepsilon$  пленки и подложки, перпендикулярные поверхности раздела и обусловленные искажением межплоскостных расстояний, вычисленные по формуле (4)

	Рефлекс	$2\theta$ , deg.		$\Delta d/d$	$\varepsilon, 10^{-6}$
		На рентгенограмме, $2\theta$	Табличное значение, $2\theta_{\text{tab}}$		
Co	10.0	41.56	41.6	0.0009	0.25
	111	44.38	44.2	-0.004	-35
	00.2	47.26	47.3	0.0008	3.5
PZT	100	21.94	22.1	0.007	1.7
	110	31.33	31.0	-0.01	-2.4
	111	38.62	38.4	-0.005	-1.2
Ni	111	43.99	44.60	0.013	160
PZT	100	21.63	22.1	0.021	2.5
	110	30.99	31.0	0.0003	0.36
	111	38.27	38.41	0.004	4.8
Pdr	110	44.51	44.83	0.007	30
PZT	100	21.63	22.1	0.021	1.1
	110	30.99	31.0	0.0003	0.15
	111	38.27	38.41	0.004	2.0

на отдельных участках, которыми являются поверхности монокристаллических зерен (квазиэпитаксиальный рост). Поэтому в наших условиях говорить об эпитаксии приходится с большой степенью условности. Керамика PZT имеет тетрагональную кристаллическую решетку с параметрами  $a = 4.017 \text{ \AA}$  и  $c = 4.139 \text{ \AA}$  [16,31]. Кобальт имеет гексагональную плотноупакованную структуру с параметрами  $a = 2.505 \text{ \AA}$  и  $c = 4.089 \text{ \AA}$  [32], никель и пермендюр кристаллизуются в ГЦК-решетке с параметрами, соответственно,  $3.524 \text{ \AA}$  [33] и  $2.857 \text{ \AA}$  [27]. Параметр рассогласования кристаллических решеток  $f$  (табл. 2) значительно превышает предел упругой релаксации механических напряжений  $f^{\text{уп}}$ , поэтому для объяснения устойчивости металлических пленок к разрушению необходимо учитывать механизм релаксации внутренних напряжений на дислокациях несоответствия.

Минимальная толщина переходного слоя металла или подложки, на которой происходит полная релаксация механических напряжений, равная

$$h_{\min} = (f^{\max}/f^{\text{уп}})d_0, \quad (3)$$

где  $d_0$  — параметр кристаллической решетки слоя металла или подложки, перпендикулярный поверхности, составляет тысячные — десятые доли микрометра (табл. 2).

Средние значения тангенциальных деформаций на интерфейсе металл/подложка

$$\varepsilon = \nu \frac{(\Delta d/d)}{2h_{\min}} d_0, \quad (4)$$

где  $\nu$  — коэффициент Пуассона для слоя металла или подложки,  $d_0$  — тот же параметр, что и в (3),

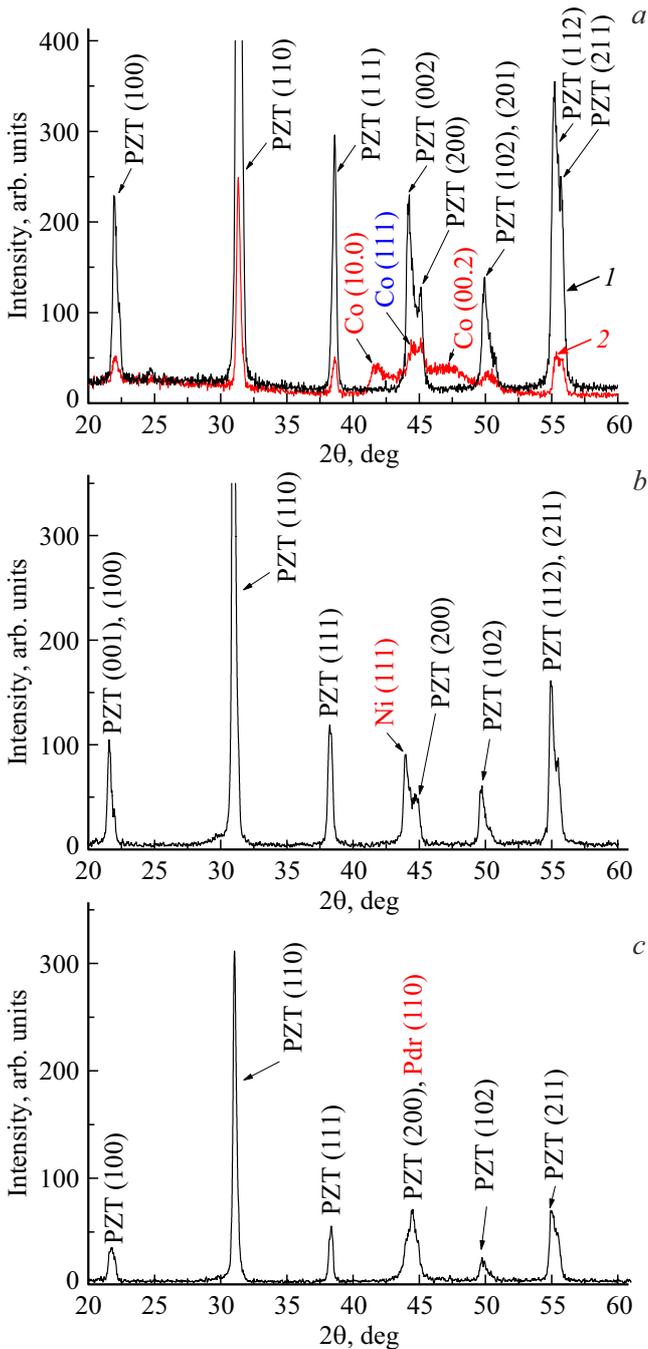
**Таблица 2.** Максимальный МЭ-коэффициент  $\alpha$  по напряжению; магнитное поле  $H$ , в котором достигается максимум, согласно рис. 4; коэффициент магнитострикции  $\lambda$  [36,37] в этом поле  $H$ ; минимальное  $(\Delta a/a)_{\min}$  и максимальное  $(\Delta a/a)_{\max}$  значения рассогласования параметров кристаллических решеток ФМ-слоя и СЭ-подложки, рассчитанные по формуле (2); минимальные толщины ФМ-слоя  $h_{\min}$ , соответствующие этим значениям  $\Delta a/a$  и рассчитанные по формуле (3); относительные деформации  $\varepsilon$ , возникающие при обратном пьезоэлектрическом эффекте, вычисленные по формуле (6); а также отношение энергии магнитострикции  $W_\lambda$  к энергии упругой деформации  $W_\varepsilon$  ФМ-слоя

	Ферромагнитный слой		
	Co	Ni	Pdr
$\alpha$ , mV/A	8.5	6.3	2.8
$H$ , kA/m	6.1	3.8	88
$\lambda$	$-3 \cdot 10^{-6}$	$-8 \cdot 10^{-6}$	$8 \cdot 10^{-5}$
$(\Delta a/a)_{\min}$	0.012	0.14	0.406
$h_{\min}$ , $\mu\text{m}$	0.003	0.050	0.12
$(\Delta a/a)_{\max}$	0.652	0.175	0.449
$h_{\min}$ , $\mu\text{m}$	0.27	0.062	0.13
$\varepsilon$ , $10^{-9}$	5.2	6.2	25
$W_\lambda/W_\varepsilon$	$\sim 10^{-10}$	$\sim 10^{-7}$	$\sim 10^{-6}$

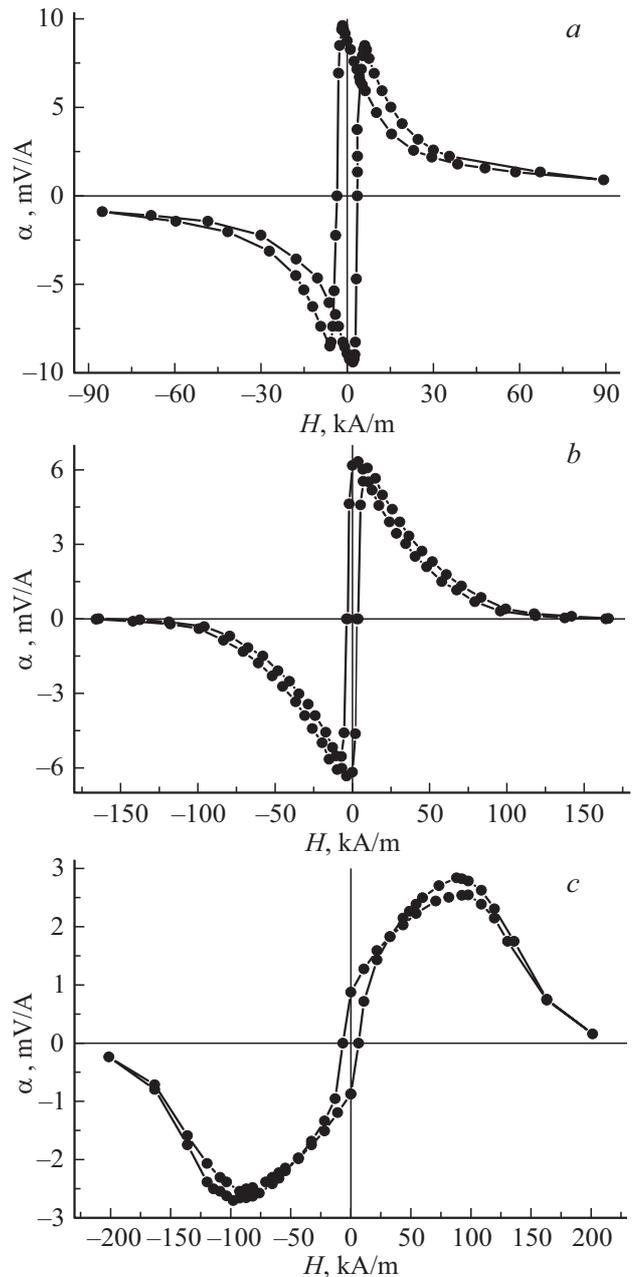
составляют порядка  $10^{-7} - 10^{-5}$  (табл. 1). В отдельных случаях деформации в металлическом слое значительно превышают соответствующие деформации в подложке. Коэффициент Пуассона связан с взаимной ортогональностью деформаций межплоскостных расстояний  $\Delta d$  и параметров кристаллических решеток  $\Delta a$ . Для всех ме-

таллов (в том числе для кобальта, никеля и пермендюра) он находится в диапазоне 0.3–0.4 [34], а для PZT — в пределах 0.28–0.32 [35, стр. 268].

Зависимости линейного поперечного МЭ-коэффициента по напряжению  $\alpha$  исследованных структур, полученных на планаризованных подложках PZT-керамики, от величины постоянного магнитного поля представлены на рис. 4. Уравнение, описывающее электрический



**Рис. 3.** Рентгенограмма планаризованной подложки PZT (1) и структур Co/PZT (2) (a), Ni/PZT (b), Pd/PZT (c). Pd — пермендюр. Толщины всех слоев металлов 2 μm, подложки — 400 μm.



**Рис. 4.** МЭ-свойства гетероструктур Co/PZT (a), Ni/PZT (b) и Pd/PZT (c) во внешнем магнитном поле в поперечной конфигурации. Pd — пермендюр. Толщины всех слоев металлов 2 μm, подложки — 400 μm.

отклик в неоднородных, в частности, в слоистых структурах при МЭ-взаимодействии, выглядит следующим образом (в линейном приближении в модели эффективной среды [3,23]):

$$\mathbf{D} = e\mathbf{S} + \varepsilon\mathbf{E} + \alpha\mathbf{H}, \quad (5)$$

где  $\mathbf{D}$  — электрическая индукция,  $\mathbf{S}$  — деформация,  $\mathbf{E}$  — напряженность электрического поля,  $\mathbf{H}$  — напряженность магнитного поля;  $e$  — пьезоэлектрический коэффициент,  $\varepsilon$  — диэлектрическая проницаемость,  $\alpha$  — МЭ-коэффициент.

При отсутствии внешнего электрического поля, как следует из уравнения (5), электрический отклик определяется упруго-механическим и магнитным воздействием, соответственно, через пьезоэлектрический и МЭ-коэффициенты. МЭ-коэффициент  $\alpha$  является произведением пьезоэлектрического и пьезомагнитного модулей [3,23]. Последний представляет собой коэффициент при линейном члене разложения магнитострикции в степенной ряд от напряженности магнитного поля. Значения коэффициентов магнитострикции для пермендюра в соответствующих магнитных полях на порядок выше, чем у таких менее стрикционных материалов как кобальт и никель [36,37]. Однако, как видно из рис. 4, МЭ-коэффициент  $\alpha$  для него заметно меньше. С другой стороны, максимальное рассогласование параметров сопрягаемых на интерфейсе кристаллических решеток больше для структуры Co/PZT (табл. 2), и МЭ-эффект, соответственно выше (рис. 4, а). Это свидетельствует о большей роли упруго-напряженного состояния на границе раздела слоев, а не магнитострикции ФМ-слоя на низких частотах переменного магнитного поля. Действительно, как было показано выше (табл. 2), относительный вклад области упругонапряженного состояния ФМ-слоя в МЭ-эффект, определяемый отношением ее толщины  $h_{\min}$  к толщине слоя металла, при различных комбинациях параметров решетки ФМ-металла и подложки, лежит в пределах от 0.001 до 0.3.

Оценка относительных деформаций, возникающих в незакрепленном образце вследствие МЭ-эффекта, в самом общем случае без учета анизотропного характера (в этом случае все индексы опущены) может быть сделана по формуле

$$\varepsilon = dE = \alpha H, \quad (6)$$

где  $d$  — пьезоэлектрический модуль;  $\alpha$  — МЭ-коэффициент по напряжению;  $E$  и  $H$  — напряженности электрического и магнитного полей соответственно. Значения пьезоэлектрических коэффициентов  $d_{31}$  и  $d_{33}$  соответственно равны  $-93.5$  и  $223$  pC/N [35, стр. 136].

Расчет по формуле (6) для структур с Co, Ni и Pd дает значения относительных деформаций подложек порядка  $10^{-9}$ – $10^{-8}$  (табл. 2), т.е. они минимум на два порядка меньше деформаций в металлической пленке и подложке, обусловленных рассогласованием параметров кристаллических решеток на интерфейсе (табл. 1). Этот факт подтверждает выдвинутую ранее нами концепцию интерфейсного МЭ-эффекта [19–22,28,38,39], согласно которой существенный вклад в МЭ-взаимодействие вносит интерфейс ферромагнетик/сегнетоэлектрик. Это обусловлено прямым взаимодействием ФМ и СЭ-компонент, которое обеспечивается формированием сильной адгезией между пленкой и подложкой. Как уже упоминалось нами ранее, это возможно в слоистых композиционных структурах, получаемых методом ионно-лучевого распыления–осаждения, когда исключается промежуточная среда в виде клеевой связующей [3,17,18].

Для сравнения вкладов от магнитострикции и упруго-напряженного состояния на интерфейсе можно сделать грубую оценку энергии деформаций, возникающих в случае всех трех полученных нами структур с кобальтом, никелем и пермендюром. Энергия упругой деформации, обусловленная магнитострикцией  $W_\lambda$ , а также рассогласованием кристаллографических параметров  $W_\varepsilon$ , пропорциональна квадрату соответствующей относительной деформации

$$W_\lambda = \frac{E\lambda_s^2}{2} V_\lambda, \quad W_\varepsilon = \frac{E}{2} \left( \frac{\Delta a}{a} \right)^2 V_\varepsilon, \quad (7)$$

где  $E$  — модуль Юнга для изотропной среды,  $V_\lambda$  — объем ферромагнетика,  $\lambda_s$  — коэффициент магнитострикции, равный относительной продольной деформации ферромагнетика в магнитном поле,  $V_\varepsilon$  — объем области металлического слоя, находящейся в упруго-напряженном состоянии. Сравнивая выражения (7), можно видеть, что  $W_\lambda/W_\varepsilon \propto [\lambda_s/(\Delta a/a)]^2$ , т.е. энергия упругой деформации в области интерфейса на несколько порядков превышает энергию магнитострикции ФМ-слоя (табл. 2).

Следует отметить, что выполненные оценочные расчеты относительного вклада напряженного состояния на интерфейсе и магнитострикции в общий энергетический баланс имеют весьма условный характер. Слой металла на поликристаллической подложке также является поликристаллическим. Поэтому внутренние напряжения обусловлены не только напряженным состоянием области интерфейса за счет рассогласования параметров кристаллических решеток и коэффициентов теплового расширения материалов, находящихся в прямом контакте, но и разупорядочением самих кристаллитов по всей глубине керамической подложки. Напряжения, возникающие из-за несоответствия кристаллических параметров, заметно быстро релаксируют до толщины слоя металла менее одного микрометра, тогда как другие, связанные с разупорядочением кристаллитов, имеются во всем слое металла и с его толщиной возрастают.

## 4. Заключение

Методом ионно-лучевого распыления — осаждения получены слоистые структуры в виде слоев кобальта, никеля и пермендюра толщиной  $2 \mu\text{m}$  на планаризованных подложках сегнетоэлектрической керамики на основе цирконата титаната свинца состава  $\text{PbZr}_{0.45}\text{Ti}_{0.55}\text{O}_3$ . Полученные структуры обладают низкочастотным магнитоэлектрическим эффектом при комнатной температуре. Максимальная величина магнитоэлектрического эффекта на частоте переменного магнитного поля  $1 \text{ kHz}$  составляет  $8.5 \text{ mV/A}$  для структур с кобальтом,  $6.3 \text{ mV/A}$  для структур с никелем и  $2.8 \text{ mV/A}$  для структур с пермендюром.

Показано, что в формирование магнитоэлектрических свойств упругие деформации интерфейсных областей

вносят более заметный вклад, по сравнению с магнито-стрикцией ферромагнитного слоя. Анализ механических деформаций показал, что деформации, обусловленные рассогласованием кристаллических решеток на интерфейсе пленка/подложка как минимум на два порядка больше, чем деформации в подложке, обусловленные обратным пьезоэффектом при магнитоэлектрическом взаимодействии. Последнее свидетельствует в пользу интерфейсного магнитоэлектрического эффекта в полученных структурах.

Данные структуры характеризуются повышенной термостабильностью в диапазоне температур от  $-25^{\circ}\text{C}$  до  $+120^{\circ}\text{C}$ , воспроизводимостью магнитоэлектрических характеристик и пригодны для использования в качестве сенсорных элементов детекторов постоянного магнитного поля, не требующих дежурного питания и работающих в диапазоне частот бытовых электросетей.

### Благодарности

Авторы благодарят Ю. Радюша (НПЦ НАН Беларуси по материаловедению) за помощь в проведении рентгеновских исследований.

### Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 23-43-10004 и Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований T23РНФ-010.

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] N.A. Spaldin. Proc. Roy. Soc. A **476**, 0542 (2020).
- [2] N.A. Spaldin, R. Ramesh. Nature **18**, 3, 203 (2019).
- [3] C.-W. Nan, M.I. Bichurin, S. Dong, D. Viehland, G. Srinivasan. J. Appl. Phys. **103**, 031101 (2008).
- [4] G.-L. Yu, H.-W. Zhang, F.-M. Bai, Y.-X. Li, J. Li. Comp. Struct. **119**, 738 (2015).
- [5] P. Zhou, M.A. Popov, Y. Liu, R. Bidthanapally, D.A. Filippov, T. Zhang, Y. Qi, P.J. Shah, B.M. Howe, M.E. McConney, Y. Luo, G. Sreenivasulu, G. Srinivasan, M.R. Page. Phys. Rev. Mater. **3**, 044403 (2019).
- [6] A.P. Pyatakov, A.K. Zvezdin. Phys. Usp. **55**, 557 (2012).
- [7] A.T. Chen, Y.G. Zhao. APL Mater. **4**, 032303 (2016).
- [8] E. Yarar, S. Salzer, V. Hrkac, A. Piorra, M. Höft, R. Knöchel, L. Kienle, E. Quand. Appl. Phys. Lett. **109**, 022901 (2016).
- [9] J. Lenz, A.S. Edelstein. IEEE Sens. J. **6**, 3, 631 (2006).
- [10] Y. Wang, J. Li, D. Viehland. Mater. Today **17**, 6, 269 (2014).
- [11] K.-H. Cho, Y. Yan, C. Folgar, S. Priya. Appl. Phys. Lett. **104**, 222901 (2014).
- [12] D.A. Filippov, T.A. Galichyan, V.M. Laletin. Appl. Phys. A **116**, 4, 2167 (2014).
- [13] S. Dong, J.-F. Li, D. Viehland. IEEE Ultrason. Ferr. **50**, 1236 (2003).
- [14] G. Srinivasan, E. Rasmussen, J. Gallegos, R. Srinivasan, Yu.I. Bokhan, V.I. Laletin. Phys. Rev. B **64**, 214408 (2001).
- [15] M. Klee, R. Eusemann, R. Waser, W. Brand, H. Van Hal. J. Appl. Phys. **72**, 1566 (1992).
- [16] N. Izyumskaya, Y.-I. Alivov, S.-J. Cho, H. Morkoç, H. Lee, Y.-S. Kang. Curr. Opin. Solid State Mater. Sci. **32**, 111 (2007).
- [17] G. Srinivasan, Y.K. Fetisov, L.Y. Fetisov. Appl. Phys. Lett. **94**, 132507 (2009).
- [18] L.Y. Fetisov, D.V. Chashin, Y.K. Fetisov, A.G. Segalla, G. Srinivasan. J. Appl. Phys. **112**, 014103 (2012).
- [19] A.I. Stognij, N.N. Novitskii, S.A. Sharko, A.V. Bespalov, O.L. Golikova, V.A. Ketsko. Inorg. Mater. **48**, 8, 832 (2012).
- [20] A. Stognij, N. Novitskii, A. Sazanovich, N. Poddubnaya, S. Sharko, V. Mikhailov, V. Nizhankovski, V. Dyakonov, H. Szymczak. Eur. Phys. J. Appl. Phys. **63**, 21301 (2013).
- [21] A. Stognij, N. Novitskii, N. Poddubnaya, S. Sharko, V. Ketsko, V. Mikhailov, V. Dyakonov, H. Szymczak. Eur. Phys. J. Appl. Phys. **69**, 11301 (2015).
- [22] A.I. Stognij, S.A. Sharko, A.I. Serokurova, S.V. Trukhanov, A.V. Trukhanov, L.V. Panina, V.A. Ketsko, V.P. Dyakonov, H. Szymczak, D.A. Vinnik, S.A. Gudkova, N.N. Poddubnaya, C. Singh, Y. Yang. Ceram. Int. **45**, 10, 13030 (2019).
- [23] M.I. Bichurin, V.M. Petrov, G. Srinivasan. J. Appl. Phys. **92**, 12, 7681 (2002).
- [24] E.P. Wohlfarth. Ferromagnetic materials. A handbook on the properties of magnetically ordered substances. Elsevier (1999). V. 2. P. 168–170.
- [25] A.I. Stognij, N.N. Novitskii, S.A. Sharko, A.V. Bespalov, O.L. Golikova, A. Sazanovich, V. Dyakonov, H. Szymczak, V.A. Ketsko. Inorg. Mater. **50**, 3, 275 (2014).
- [26] V.M. Petrov, G. Srinivasan, V.M. Laletin, M.I. Bichurin, D.S. Tuskov, N.N. Poddubnaya. Phys. Rev. B **75**, 174422 (2007).
- [27] International Centre for Diffraction Data. (1998). JCPDS.
- [28] A.I. Stognij, N.N. Novitskii, S.V. Trukhanov, A.V. Trukhanov, L.V. Panina, S.A. Sharko, A.I. Serokurova, N.N. Poddubnaya, V.A. Ketsko, V.P. Dyakonov, H. Szymczak, C. Singh, Y. Yang, J. Magn. Mater. **485**, 291 (2019).
- [29] J.W. Matthews, S. Mader, T.B. Light. J. Appl. Phys. **41**, 3800 (1970).
- [30] A.M. Prokhorov, G.A. Smolenskii, A.N. Ageev. Sov. Phys. Usp. **27**, 339 (1984).
- [31] Landolt-Bornstein. Numerical data and functional relationships in science and technology. Group III. Crystal Solid State Phys. V. 4(b). Magnetic and Other Properties of Oxides / Eds K.-H. Hellwege, A.M. Hellwege. Springer-Verlag, N.Y. (1970).
- [32] C. Kittel. Introduction to Solid State Physics. John Wiley & Sons. Inc. Berkeley (1996). 408 p.
- [33] J. Emsley. The Elements. Oxford University Press. (1998). 300 p.
- [34] I.S. Grigoriev, E.Z. Meilikhov, A.A. Radzig. Handbook of Physical Quantities. CRC Press (1996). 1568 p.
- [35] Б. Яффе, У. Кук, Г. Яффе. Пьезоэлектрическая керамика / Под ред. Л.А. Шувалова. Мир, М. (1974). 288 с.
- [36] Y. He, J.-P. Wang. IJCS **6**, 2/3, 1 (2016).
- [37] The free dictionary <https://encyclopedia2.thefreedictionary.com/Magnetostrictive+effect>, 2021 (accessed 14 February 2023).
- [38] S.A. Sharko, A.I. Serokurova, N.N. Novitskii, N.N. Poddubnaya, V.A. Ketsko, A.I. Stognij. Ceram. Int. **48**, 9, 12387 (2022).
- [39] S.A. Sharko, A.I. Serokurova, N.N. Novitskii, V.A. Ketsko, A.I. Stognij. Ceram. Int. **46**, 14, 22049 (2020).

Редактор К.В. Емцев